



TITLE:

6.X線散乱による散乱のForm Factor(II講義ノート,基研研究会報告)

AUTHOR(S):

檜原, 良正

CITATION:

檜原, 良正. 6.X線散乱による散乱のForm Factor(II講義ノート,基研研究会報告). 物性研究 1967, 8(4): D54-D66

ISSUE DATE:

1967-07-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/86061>

RIGHT:

6 X線散乱による散乱の Form Factor

東教大 檜 原 良 正

X線を使って液体 He^3 の性質を調べる実験は University of Chicago と Stanford University で行われた。University of Chicago では Structure factor を測り Stanford University では Zero Sound の detection である。

1) Structure Factor

液体 He^4 , Bose liquid の structure factor は X線と neutron diffraction の両者によって行われ、更に中性子の非弾性散乱の際の neutron の波長の変化の測定から Landau の予言した dispersion relationship が確認された。他方液体 He^3 液体の測定はいくつかの所で試みられています。液体 He^3 neutron diffraction を行う事は He^3 の中性子に対する 数, 常数が大きい事とその反応の際に熱が発生するためにむづかしいといわれている。工今これからのべるのは去年 University of Chicago で私が Dr. Lothar Meyer と試みた He^3 の X線回析の実験の結果です。時間的制約のために最終的な結果ではない。

Cryostat の概略は図 1 に示す通りで現在の所 He^3 -cryostat としてましたが、 He^3 evaporator と cell C の間に今入っている銅棒を paramagnetic salt の pill の thermal switches で置き変れば、断熱消磁法によっても以下の温度を作る事が出来る。実際、そうやって 0.1°K 以下の一定温度約 2 時間とどめておく事が出来た。cell (sample 液体の入る所) C は Be の円筒 ($\frac{1}{4}$ " I.D. wall thickness 0.01" 長さ $\frac{1}{2}$ ") であって、上にのべた銅の棒で He^3 evaporator につながっている。温度は cell のすぐ上の銅にとりつけた carbon resistor を使って測った。これは別の He^3 cryostat で Calibrate した。

Cryostat は X線回析装置の turntable の上にのっており (Cryostat は fix してあって回転しない), X線ビームは水平に Cryostat に入って来、

Cryostat の outerjacket と He⁴ clewar の cell と同じ高さの所には Be 薄板をはって X 線は通過できるが, cryostat の真空は保たれるようにしておく。X 線回析装置は Picker 製のもので (図 2) X 線管は銅 target のものでこの X 線を monochrometize するために doubly best LiF crystal を使っている。そのため, sample に入ってくる Xray は CuK_α で波長は 154Å である。X 線管と LiF crystal の間にある slit S₁ の広さによって入射光の diverging angle がきまり crystal から反射吸収散光となり S₂ の所に集点がある。この実験では, この光が cell を通る時, 1.5 mm の巾であった。S₃ と S₄ によって counter から cryostat をみる視野がきまる。X 線が液体又は気体のサンプルから散乱されると, それは coherent と incoherent の散乱の和になる。観測される散乱の強度 I_{obs}(θ) は (単原子の場合)

$$I_{obs}(\theta) = BP(\theta)Y(\theta)N(\theta) [\sigma_{co}(\theta)(i(s) + 1) + \sigma_{inc}(\theta)]$$

ここで, $B = \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2$

$$P(\theta) : \text{polarization factor} = \frac{1 + \cos^2 2\theta_m \cos^2 2\theta}{1 + \cos^2 2\theta_m}$$

Y(θ) : 透過率

N(θ) : 散乱角 2θ の方向の散乱に寄与する原子の数

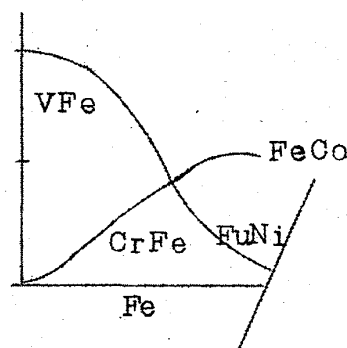
$\sigma_{co}(\theta)$: coherent scattering cross section per atom

$\sigma_{inc}(\theta)$: incoherent scattering cross section per atom

i(s) + 1 : structure factor, S(k) と書く事もある

$$i(s) \text{ の } S \text{ は } S = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta$$

θ は散乱角の半分



σ_{co} と σ_{inc} は F.A. Matsen の理論値を使って計算した。大きな散乱角では incoherent scattering が散乱強度の大部分をしめ, X 線回析の解析に不確定さの大きな原因になる事が知られている。又, He のような軽い元素では incoherent な部分がしめる割合が大きいので長時間にわたって測定を続けなくてはならない。上式の中で, N(θ) と Y(θ) が実験装置 (主にビー

△や cell の大きさ，それらの相対的位置)によって異なるので，我々の場合，これらをきめるのに，次の方法をとった。Henshaw が液体 He^4 の neutron scattering の実験から 229°K の液体 He^4 の $i(S)+1$ をきめているので，同じ温度で同じ液体の測定を，我々は X 線で行ってその強度 $I_{\text{obs}}(\theta)$ を測定し，この二つを上式に代入して， $N(\theta)Y(\theta)$ を決定した。この外の色々な方法も考えられる。次に液体 He^3 の散乱強度を $229^\circ, 125^\circ, 0.65^\circ \text{K}$ の三つの温度で測り，上式を使って He^3 の $i(S)+1$ を計算した。その時に上できめた $N(\theta)Y(\theta)$ の値に He^3 と He^4 の number density が異なる事を更に考慮に加えた。 σ_{10} と σ_{inc} は He^3 と He^4 の違いは少いので同じとした。

散乱角を 0 度から 90° にわたって色々な角度について夫々 200 秒 ずつ測定しこれを何度もくりかえした。main beam の強度を約一時間毎に測定し，その時間中には急激な変化がないとして，その間の beam intensity はその平均と仮定し，全データを main beam のある一つの値に normalize した。main beam のエネルギーの 10% を Fe foil を使って別の Counter にとりだし，散乱強度を Monitor する事も試みたが電子回路の問題が短時間に解決しなかったので，今回はこの方法は使わなかった。

分解角度は約 1° である。

結果，図 3 は三つの温度 $229^\circ, 125^\circ$ と 0.65°K での液体 He^3 の $i(S)+1$ を示している。

- (1) 液体 He^3 の main peak は $S=1.9$ にある。
- (2) この peak の高さは，この温度内では殆んど変らない。 $(1.25^\circ \text{K}$ の peak が少し低い但实际上に低いというより，実験の error によるものと思う) はっきり，温度差による peak の高さの差をみわけするためには更に改良と長時間の測定を必要とする
- (3) S が 3 より大きな所では我々の data の精度はきわめて悪い。これは前にのべたように He が大きな incoherent scattering をこの範囲で示す事と，測定回数が少なすぎる事によるものである。どの X 線回析でもそうであるが，我々の場合でも S が大きくなればなる程 error が大きくなっている。 $(S=4$ のあたりで 7% 位)
- (4) 理論的にいって， S を小さくしていくと， $i(S)+1$ は nkX_T に $S=0$

である。ここで、 n は原子の number density k は Boltzman 定数、 χ_T は isothermal compressibility である。この値を Athuis と Flicker の実験値を使って計算し、図の中では四角な印で示してある。温度が下ると共にこの $nk\chi_T$ の値は減少する。 $T = 2.29^\circ \text{K}$ の場合、 0° 附近の散乱角の測定を更にしなくては extrapolation はむづかしいが、他の二つの温度では我々の data を extrapolate すれば、 $nk\chi_T$ の計算値に到達しうるように少くとも図の上ではみえる。

(5) $i(s)+1$ の peak の値は He^4 の peak の値より約 10% 少い。多分 He^3 では He^4 より Zero-point energy が更に大きな効果をもつためであろう。W.E.Massey (P.R. 151, 153, '66) が Jastrow 型の波動函数と Kirkwood の三体分布関数の superposition approximation を使ってボーズ液体の Groundstate の性質を計算した。分布函数と Jastrow 型の波動函数の一对一の対応をつけるために Bogolubov-Green-Kirkwood-Yvon equation を使った。変分法を用い pairdistribution function を変数として全エネルギーを極小とする条件の分布函数を求めた。次に mass-3 の bose 系の potential が mass 4 の bose 系の potential と同じだと仮定して Massey は mass-3 系の ground state の性質を計算した。Massey の $S(k)$ の理論値を図 3 に実線で示してある。理論値と実験値とはわりとよく会っているようだが、理論、実験共に更に改良する必要がある。

C.W.Woo (P.R. 151, 138, '66) は correlated basis function の方法を使って液体 He^3 の ground state の性質をしらべている。実験をもとにして求めた structure factor をフーリエ変換すると radial distribution function が求められる。その関係は

$$4\pi r^2 \rho(r) = 4\pi r^2 \rho_0 + \frac{2r}{\pi} \int_0^\infty S_1(s) \sin(rs) ds$$

ここで $\rho(r)$ は、液体中の一点から r だけ離れた所の number density、 ρ_0 は average density である。

$\rho(r)/\rho_0$ を $g(r)$ と名づけると

$$g(r) = 1 + \frac{1}{2\pi^2 r \rho_0} \int_0^\infty S_1(s) \sin(rs) ds$$

X線散乱による散乱のForm Factor

現在の所 0.65°K について, radial distribution function を求めた。

$4\pi r (\rho(r) - \rho_0)$ は平均のまわりの原子密度の fluctuation をあたえるが, これから密度が zero から立ち上る点は, 235\AA , 最初の peak の位置は約 4\AA にある。この peak の位置のまわりに対称的にとった $4\pi r^2 \rho(r)$ のカーブの下
の面積から nearest neighbor atom の数を数えると約 7 になる。He⁴ とくらべてこの距離はほぼ同じか少し大きい, atom の数は He⁴ の 8.5 から 10 というのに比べて少い。

$g(r)$ と r の関係を図 5 に示した。点が実験で線は Massey の計算である。最近 Gaskell (P.L. 23, 673, '66) が $T = 0^\circ\text{K}$ 又は可能な最低温度で He³ 液体の structure factor を測る事を提案した。これは Fermi 面の sharpness をしるのに役立つ。彼によると He³ の分布関数は $T = 0$ で

$g(r) - 1 \sim r^{-4} [1 + \text{const} \cos 2 k_f r]$ である。又 He³ は He⁴ より, 大きな r で $g(r)$ の振動が観測されるであろうと予言している。我々の $T = 0.65^\circ\text{K}$ の $g(r)$ は $\cos 2 k_f r$ より少しはやい周期で振動しているが, これは実験の不正確さ, 高温のためであろう。

別の二つの温度についても計算中である。

2) Zero Sound

X-ray による zero sound の測定は Stanford University の Little と Shar によって行われた。

Little 以前に Wilks による acoustic impedance の測定。Wheatley による直接, 波の伝播と減衰を調べる方法から zero sound から確認され, 1st sound から zero sound への変換温度は,

Wilks の場合 $1.000M_c$ で 0.1°K

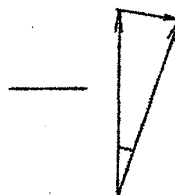
Wheatley の場合 $455M_c$ で 0.018°K

$15.4M_c$ で 0.011°K であった。

さて X-ray が小散乱角で散乱された場合, initial state と final state の energy と momentum の変化は小さい。

散乱角を θ ,

X-ray の incident energy を $\hbar\omega_i$



液体 He^3 への momentum transfer を $\hbar q$ 光速を c) とすると

小散乱角の場合, 散乱角 θ は

$$2\theta = \frac{q_0}{\omega_r} \text{ で与えられる}$$

liquid He^3 と X-ray との interaction を考え, differential cross section を計算する。それから, liquid Structure factor, $L_t(\omega, T)$ を導くと

$$L_t(\omega, T) = r(T) e^{-W} \frac{\hbar T}{m u^2} \cdot \frac{\hbar \omega}{2 k T} \coth \frac{\hbar \omega}{2 k T}$$

$$\begin{cases} \omega = \omega_r \frac{u}{c} \theta \\ W = \text{Debye Waller factor} \\ r(T) = \frac{C_p}{C_v} \end{cases}$$

この式の形は zero sound でも 1st sound でも同じになる。 $\frac{\hbar \omega}{2 k T}$ の項に $\omega = \omega_r \frac{u}{c} \theta$ を代入すると

$$L_t(1\theta, T) \propto \frac{1}{u^2} u \propto \frac{1}{u}$$

L は大体 $\frac{1}{u}$ に比例している事がわかる。

実験装置は He^3 cryostat を使い, X線管は copper target である。monochromatize せずに collimate した X-ray を He^3 target に送り, 2π -slit を通った散乱を continuous flow gas proportional counter で観測した。

結果

Shar は $2\theta = 1.73^\circ = 3.03 \times 10^{-2} \pm 10^{-4}$ radian において liquid He^3 からの散乱を 0.35° から 1.6° K の温度範囲で観測した。この角度は He^3 の Fermi momentum $k_F = 0.785 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$ の $\frac{1}{6}$ に相当し phonon frequency で表せば $226 \times 10^{11} \text{ rad/sec}$ に相当する。この周波数は他の zero sound の実験よりはるかに高い。liquid He^3 の density 変化を normalize し nonadiabatic process を除くと, number of count N は

$$N = A \frac{u(0)}{u(T)} \coth X(2\theta, T)$$

X線散乱による散乱のForm Factor

$$\left\{ \begin{array}{l} u(0); \text{1st sound velocity at } T = 0 \\ X(2\theta, T) \equiv \frac{\hbar \omega(2\theta, T)}{2kT} \\ A = \text{const} \end{array} \right.$$

Nは温度に hypercritical 点の所で explicit に, 又 $u(T)$ の形で implicit に依存している。実験結果は図6に黒円と三角で示してある。

実験と上式を比較するにあたって $u(T)$ の依存性がかなりあるとして; $u(T)$ の実験値を上式に代入するか, ないとして $u(0)$ をこの温度範囲で一定とみなす方法が考えられる。先ず第一の方法をとり, $A = 16.500; 15.500, 16.070$ としたカーブが夫々実線, 破線で図6に示してある。実線は高温ではよくあっているが, 0.6° 以下では段々はづれてきている。もし, u が温度によらないとして Zero Sound Velocity $u_0 = 1.033u_n(0)$ をとり, $A = 16.500/1.033$ をとると ———— のカーブになり, 低温では実験と一致し, 高温になるとはづれてしまう。(Landauによると zero sound velocity は温度によらない) 次に上式を $u_n(T)$ のまわりで Taylor 展開をして最初の項だけとると(ここで $u_n(T)$ は温度 T の normal sound velocity)

$$\frac{u(T) - u_n(T)}{u_n(T)} = \frac{1 - \frac{N(u(T))}{N(u_n(T))}}{1 + \frac{2au_n(T)}{\sinh 2au_n(T)}}$$

ここで

$$a = \frac{\hbar \frac{2\pi}{\lambda} \theta_0}{2kT}$$

$N(u_n(T))$ は前図の実線

$N(u(T))$ は観測値

$\frac{u(T) - u_n(T)}{u_n(T)}$ を温度の函数として示したのが図である。この図で点は, 前図の点をつなぐようなカーブを書いておいて $N(u(T))$ を求めて出したものである。

要するに Shar のいいたい事は, 0.5°K あたりで sound velocity に transition がおこり, その中は 0.1°K である。

$\frac{u(0) - u_n(0)}{u_n(0)}$ は 0.033 ± 0.01 でこれは $v = 189.5 \pm 2 \text{ m/sec}$ にあたる。

他の実験との比較

前にも述べたように Wilks は 1000Mc で liquid He^3 の acoustic impedance を測り, 0.092°K で速度が 0.1 ± 0.03 変る事を示した。Wheatley は 15.4Mc と 45.7Mc で音速とその減衰を測り, 1st sound から zero sound に変る事。測定が Landau 理論によくあう事を示した。relaxation time が温度の二乗に逆比例しその定数は zero sound と first sound で異り

$$\left| \begin{array}{ll} \tau_1 T^2 = 1.5 \times 10^{-12} \text{ sec } ^\circ\text{K}^2 & \text{1st sound} \\ \tau_0 T^2 = 1.1 \times 10^{-12} \text{ sec } ^\circ\text{K}^2 & \text{zero sound} \end{array} \right.$$

Shar, Little の実験結果は外の実験より更に高い周波数 (35×10^4 Mc) の音波のある事を示している。Wheatley の実験から低い周波数では τT^2 は一定である事がわかった。又 transition では $10\tau=1$ である。この二つを組合わすと T^2/ω が一定でなければならない。(T^* は transition temperature)
Landau によると周波数が高くなると $\hbar\omega > kT$ になるので T^2/ω を $\frac{T^{*2}}{\omega} (1 + \frac{\hbar\omega}{2\pi kT})^2$ と書きかえなくてはならない。

Table に三つの group の結果をまとめた。X線の結果は他の実験と多くの点で一致している。音速の変化は Wheatley のとよく合っている $T = 0.51^\circ$ では $\tau T^2 = \text{一定}$ とはいえないが T^2/ω の値も割とよく合っている。

relaxation time の τ は Abrikosov-Khalatnikov によると

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\eta} \left(\frac{1}{3} \rho v_f^{*2} \right) \left(\frac{3}{5} \frac{m^*}{m} \right) \quad v_f \equiv \frac{p_f}{m}$$

で viscosity η と関係づけられている。この式に η の実験値 と Fermi liquid parameter の値をいれて $\frac{1}{\tau}$ をもとめる事ができる。transition temperature では $\omega\tau=1$ という事から $\frac{1}{\tau} = \omega$

上式を使って, $\frac{1}{\tau}$ を計算したのが table の最後のランで X線散乱の場合をのぞいて他の場合では 第二ランの ω の値 と一致している。Kinetic theory を使くと

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\eta} \frac{1}{3} \rho \bar{v}^2 \quad \bar{v}^2 = \frac{3kT}{m}$$

で τ は与えられるが, これを使って $\frac{1}{\tau}$ をもとめると $2.15 \times 10^{10} \text{ sec}^{-1}$ になって, ω とのはづれが更に大きくなる。(この式を他の実験に使つても悪い結果を与えるだけである。)

X線散乱による散乱のForm Factor

これからいえる事は、高い周波数高い温度では viscosity から出した τ と音速の transition temperature から出した τ とでは値が異なるのかもしれない。或は、viscosity と τ との上式を高温で使うのが不適當かもしれない。

このX線散乱実験では非常に高い周波数 $\omega = 226 \times 10^{11} \text{ rad/sec}$, $q = 0.123 \text{ \AA}^{-1}$ 、即ち $q = \frac{1}{6} q_F$, $\hbar\omega > kT$, $\hbar\omega < E_g$ の条件下で、1st sound から zero sound の transition が 0.5°K という高い温度でおこる事を示した。

transition の温度・音速の変化の割合は Landau の理論や他の実験と一致した。

Chicago, Stanford の両実験とも更に精度を上げ、温度範囲角度範囲の拡張が必要である。

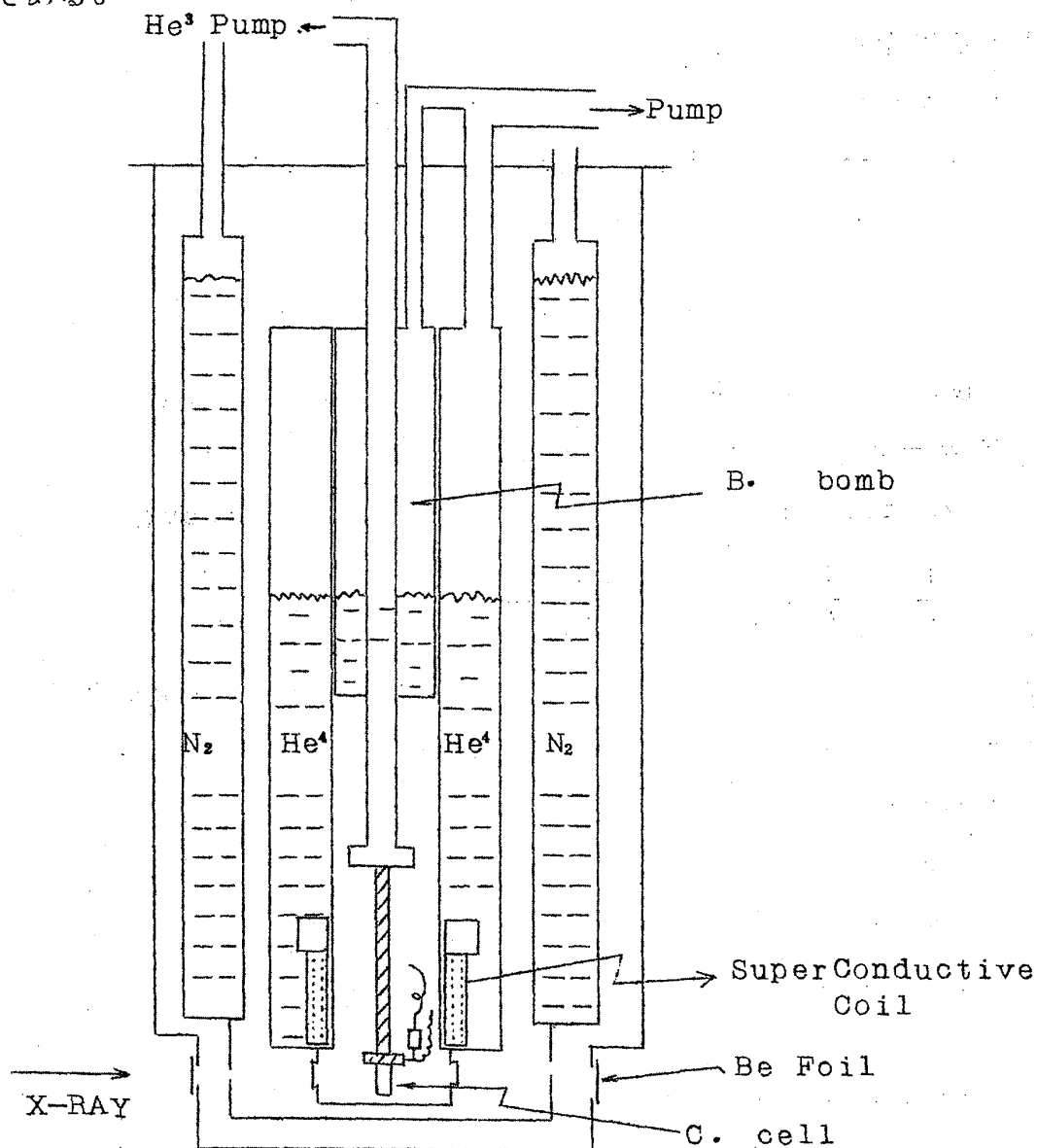


図1 CRYOSTAT

檜原良正

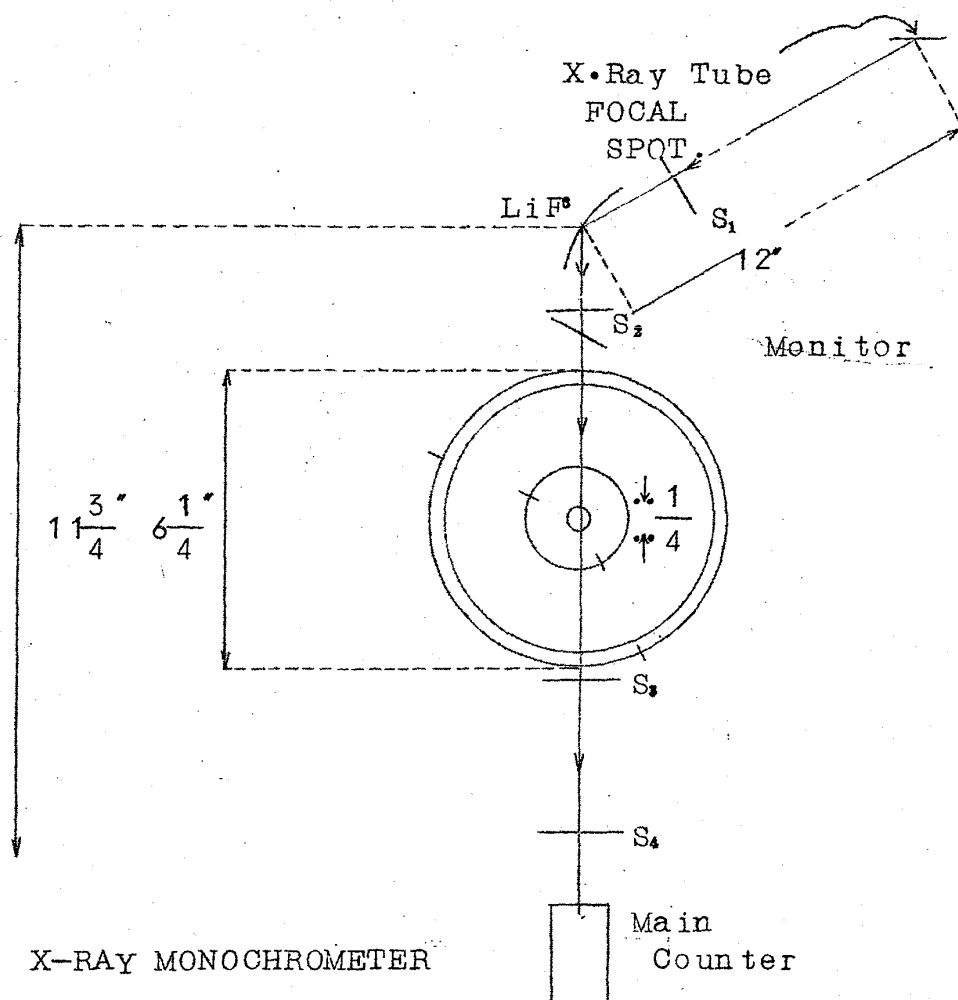
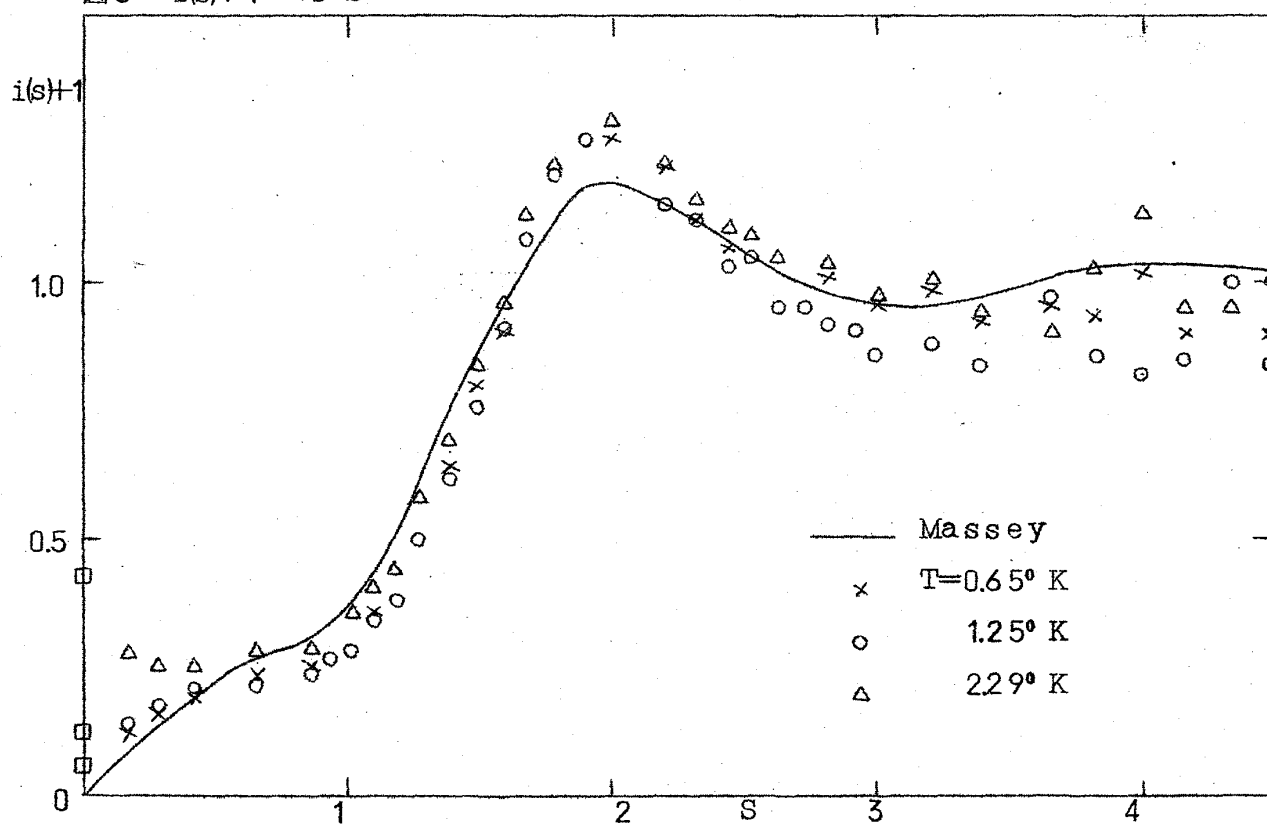


図2 X-RAY MONOCHROMETER

図3 $i(s)+1$ vs S



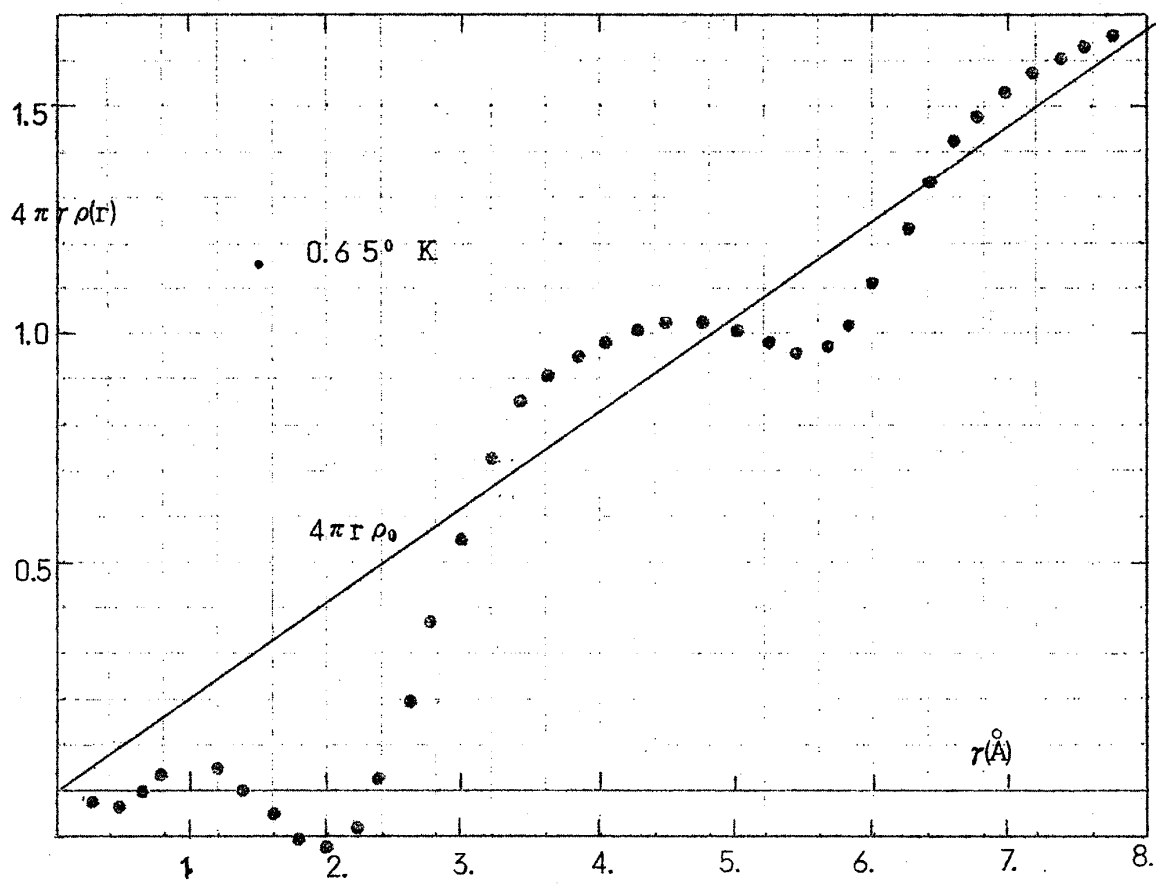


Figure 4 $4\pi r \rho(r)$ vs r at $T=0.65^\circ \text{ K}$

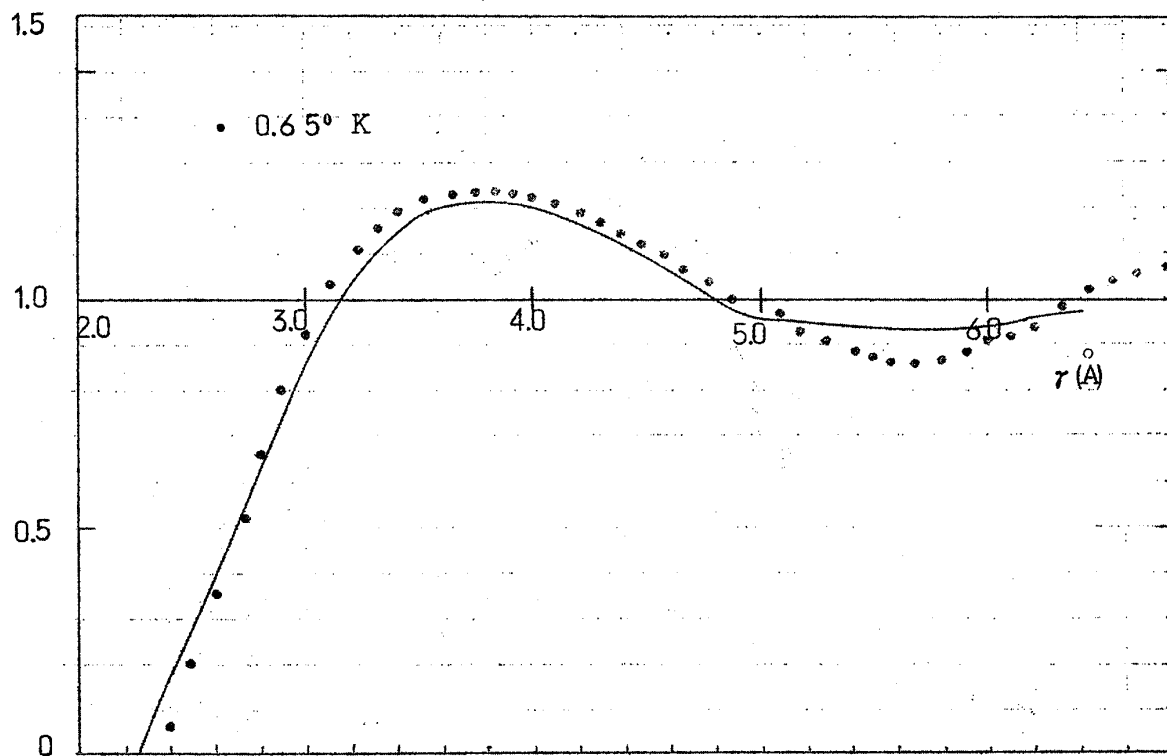
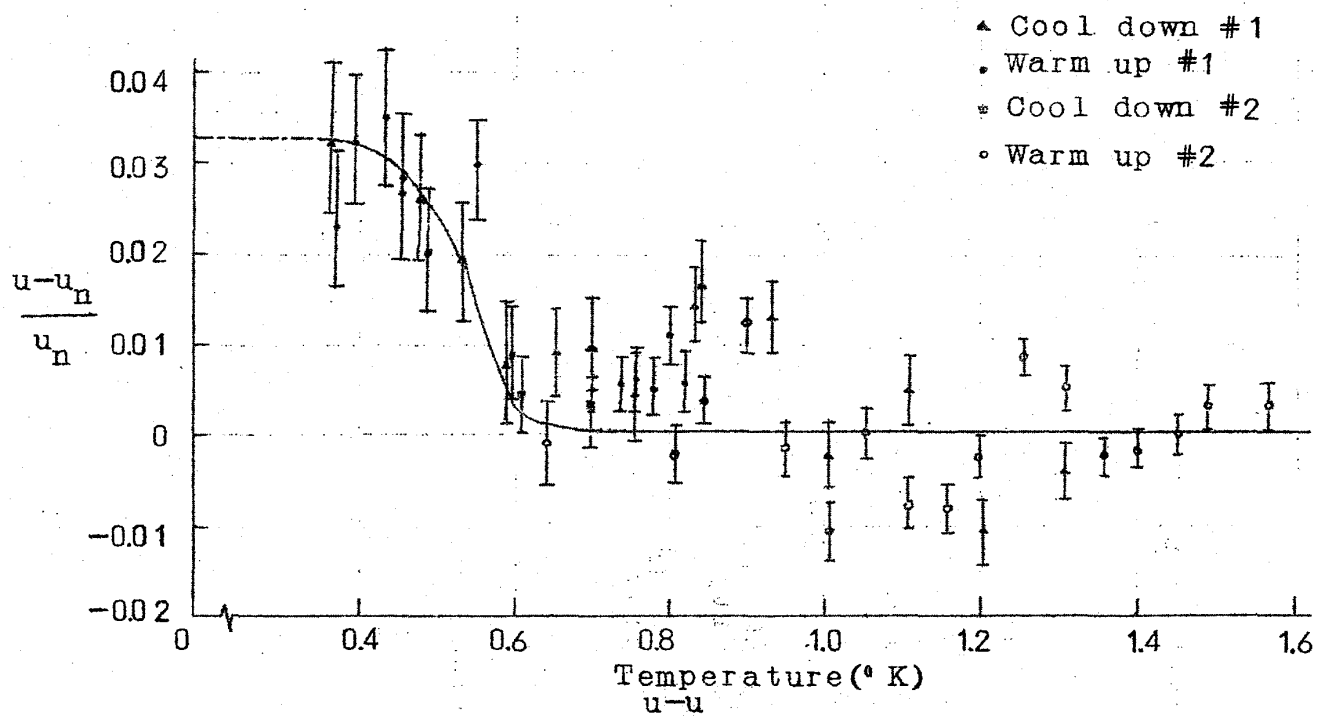
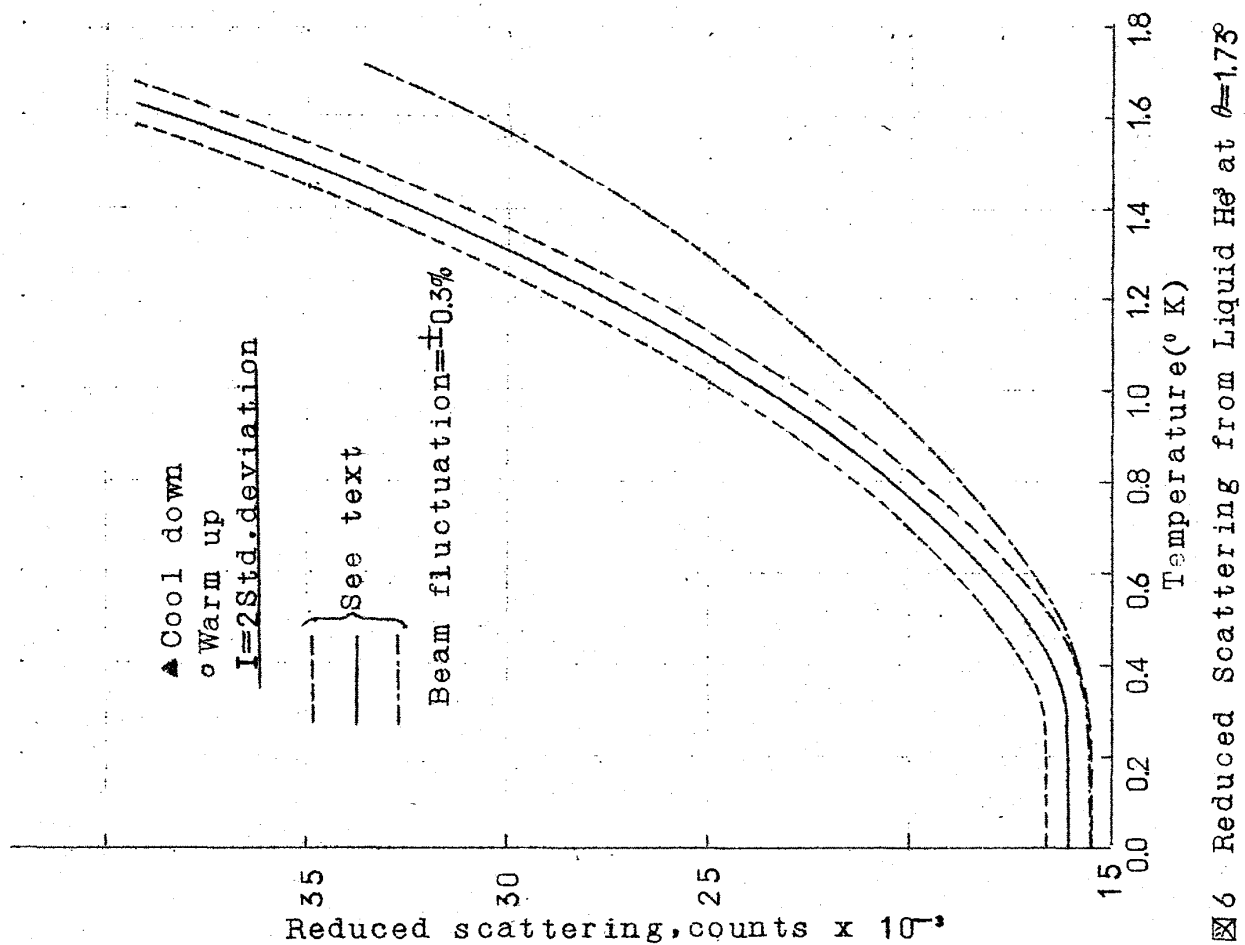


Figure 5 $g(r)$ vs r at $T=0.65^\circ \text{ K}$
curve by Massey at $P=0$



7

$\frac{u - u_n}{u_n}$ as a Function of Temperature

Table

Compilation of Results of Experiments Dealing With Zero Sound Phenomenon in Liquid He³

Type of Measurement	rad/sec	Transi- tion Temper- ature T* °K	$\frac{T^{*2}}{\omega}$ °K ² sec.	$\frac{T^{*2}}{\omega} \left[1 + \left(\frac{\hbar\omega}{2\pi kT} \right)^2 \right]$ °K ² sec.	$\frac{u - u_0}{u_0}$	$\frac{1}{\tau}$ Landau Theory sec ⁻¹
X ray scattering ^(a)	2.26×10 ¹¹	0.51	1.16×10 ⁻¹²	1.5 ×10 ⁻¹²	0.033±0.01	2.87×10 ¹⁰
Acst. impedance ^(b)	628×10 ⁹	0.092	1.35×10 ⁻¹²	1.35×10 ⁻¹²	0.10 ±0.03	3.88×10 ⁹
Velocity ^(c)	2.86×10 ⁸	0.018	1.14×10 ⁻¹²	1.14×10 ⁻¹²	0.035±0.003	1.66×10 ⁸
Velocity ^(c)	9.67×10 ⁷	0.011	1.25×10 ⁻¹²	1.25×10 ⁻¹²	0.035±0.003	6.21×10 ⁷
Attenuation ^(c)	2.86×10 ⁸	0.0193	1.3 ×10 ⁻¹²	1.3 ×10 ⁻¹²		
Attenuation ^(c)	9.67×10 ⁷	0.0113	1.3 ×10 ⁻¹²	1.3 ×10 ⁻¹²		

Reference (a): Present experiment

8

(b): Keen, Matthews, and Wilks.

(c): Abel, Anderson, and Wheatley.

9